

文章编号: 1001-3806(2011)06-0800-04

缓冲气压对 CO₂ 激光 Al 靶等离子体参量的影响

吴涛^{1,2}, 王新兵^{1*}, 唐建¹, 饶志明¹, 王少义¹

(1. 华中科技大学 光电子科学与工程学院 武汉光电国家实验室, 武汉 430074; 2. 武汉工程大学 理学院, 武汉 430074)

摘要: 为了研究缓冲气压对激光等离子体参量的影响, 利用 CO₂ 激光烧蚀 Al 靶产生等离子体, 缓冲气压变化范围为 10⁻⁴ Pa ~ 2 × 10³ Pa, 激光脉冲能量为 180 mJ/脉冲, 在局域热平衡和光学薄等离子体假设下, 采用发射光谱法计算了等离子体的电子温度和电子密度, 并研究了缓冲气压对这些参量的影响。结果表明, 等离子体的电子温度和电子密度分别在 1.05 eV ~ 2.47 eV 与 1.95 × 10¹⁶ cm⁻³ ~ 10.5 × 10¹⁶ cm⁻³ 范围内, Al 等离子体的电子温度随气压的增大而减少; 低缓冲气压时, 电子密度随气压增大而减小, 当气压达到 600 Pa 时, 激光脉冲会击穿空气形成等离子体, 电子密度又开始上升, 当气压超过 3000 Pa 时, 空气等离子体会屏蔽激光脉冲能量, 使到达靶面的激光能量急剧下降, Al 原子的特征谱线也随之减弱而几乎消失。这一结果对理解缓冲气压对激光与物质相互作用过程的影响是有帮助的。

关键词: 激光技术; 等离子体光谱; 电子密度; 电子温度

中图分类号: O539 **文献标识码:** A **doi:** 10.3969/j.issn.1001-3806.2011.06.021

Analysis of the properties of CO₂ laser-induced aluminum plasma at different ambient pressures

WU Tao^{1,2}, WANG Xin-bing¹, TANG Jian¹, RAO Zhi-ming¹, WANG Shao-yi¹

(1. Wuhan National Laboratory for Optoelectronics, School of Optoelectronic Science and Engineering, Huazhong University of Science and Technology, Wuhan 430074, China; 2. School of Science, Wuhan Institute of Technology, Wuhan 430074, China)

Abstract: In order to study the properties of laser-induced plasma at different ambient pressures, emission spectroscopy was studied on aluminum plasma generated by CO₂ laser with energy of 180 mJ/pulse at different air ambient pressures. The dependency of plasma temperature and density on ambient pressures were estimated from the analysis of spectral data by assuming the conditions of local thermodynamic equilibrium and optically thin plasma. Electron temperature was measured in the range of 1.05 eV ~ 2.47 eV, and electron density was measured in the range of 1.95 × 10¹⁶ cm⁻³ ~ 10.5 × 10¹⁶ cm⁻³, as the ambient pressure was varied from 10⁻⁴ Pa to 2 × 10³ Pa. The results show that the plasma temperature decreases with the ambient pressures. At first, the electron density decreases with the increase of ambient pressure under low pressure. When the pressure reaches 600 Pa, the broken air plasma may interact with Al vapor and the electron density increases with the pressure increasing. For larger ambient pressure up to 3000 Pa, the Al emission lines eventually disappear, suggesting that the laser energy is almost screened by the air plasma. The results provide useful guidance to understand the influence of air pressure on laser-matter interaction.

Key words: laser technique; plasma spectroscopy; electron density; electron temperature

引言

激光脉冲辐照到固体靶表面上时, 烧蚀区域会在极短的时间(几个纳秒量级, 远小于激光脉冲宽度)内熔化和蒸发, 喷射出的等离子体羽辉将通过逆韧致辐射和光电离吸收入射激光能量, 产生大量的激发态原子、离子和电子, 在靶面附近形成高温、高密度的等离

子体区域。利用强激光烧蚀靶材料表面使之迅速气化获得瞬变的高温等离子体, 在微量元素分析^[1]、薄膜沉积^[2]、激光推进^[3]以及生物医学^[4]等诸多方面有广泛的用途。许多研究者利用光谱分析法, 在激光等离子体的时、空特性方面做了很多工作^[5-7]。国内的研究主要是利用固体激光器(如 Nd:YAG 激光, 1.06 μm)诱导产生等离子体^[8-10], 而利用气体激光器(CO₂ 激光, 10.6 μm)诱导产生等离子体的实验研究还不多见。另外, 激光等离子体的研究工作多集中在低真空或者大气环境中, 缓冲气体如何影响等离子体的产生机理和物理特性仍不是很清楚。在不同的缓冲气压下, 采用

作者简介: 吴涛(1980-), 男, 讲师, 博士研究生, 主要从事激光等离子体及应用方面的研究。

* 通讯联系人。E-mail: xbwang@mail.hust.edu.cn

收稿日期: 2011-03-02; 收到修改稿日期: 2011-04-18

光谱法对 CO₂ 激光诱导 Al 靶等离子体发射光谱进行了研究,计算了电子密度和电子温度,并分析了电子密度和电子温度随气压的变化规律。

1 实验装置

实验装置如图 1 所示。光源为横向激励大气压脉冲 CO₂ 激光器 (1060nm, 85ns, 1Hz), 激光脉冲能量利用 Gentec ED500 能量计测量。样品放置在可充、抽气的真空靶室内, 脉冲激光经 ZnSe 晶体窗口和焦距为 100mm 的 ZnSe 聚焦透镜以 45°角入射到真空靶室的平板 Al 靶上, 焦斑直径约为 1mm。在垂直于靶面的方向上, 等离子体羽辉的发射光谱信号经焦距 150mm 的透镜成像耦合进裸光纤, 光谱信号经光纤传输到美国普林斯顿公司的光谱仪 (Acton Pro, Spectra-Pro 750i) 的入射狭缝。光谱仪装有刻线密度分别为 300 条/mm, 600 条/mm 和 2400 条/mm 的 3 面光栅, 光谱仪利用配套的辐射标定灯谱线进行波长校准, 利用钨灯进行可见光波段的光谱强度响应标定。利用美国泰克公司的 TDS7154B 数字示波器接受激光器腔内的放电干扰信号, 外部同步触发电荷耦合器件 (charge-coupled device, CCD) (PI MAX 300) 接受光谱信号, CCD 取样门宽设定为 5 μs, 通过谱仪自带软件 WinSpec/32 控制光谱仪与 CCD, 并进行数据记录和处理。

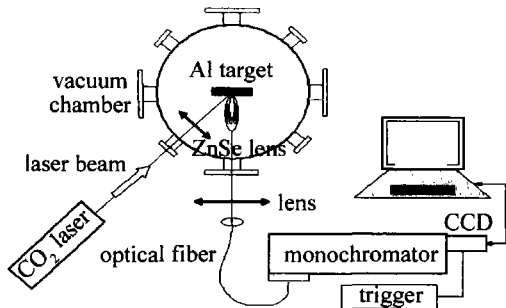


Fig. 1 Schematic of the experimental setup used for optical emission spectroscopic studies

2 实验结果与分析

CO₂ 脉冲激光放电电压为 22kV, 气压为 70kPa, 气体体积比为 $V(\text{CO}_2):V(\text{N}_2):V(\text{He}) = 1:1:5$ 时, 激光脉冲能量为 180mJ/脉冲, 脉冲时域波形通过光子牵引探测器 and 示波器记录测量, 如图 2 所示, 脉冲半峰全宽为

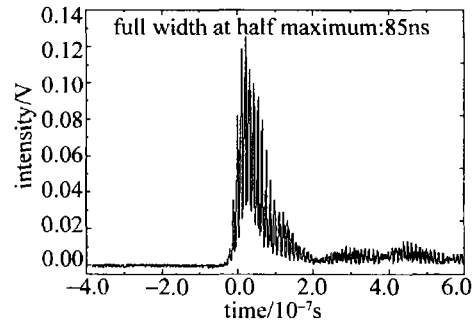


Fig. 2 Temporal waveforms of CO₂ laser pulse

85ns。真空靶室安装有涡轮分子泵, 气压可控制在 $10^{-4}\text{Pa} \sim 10^5\text{Pa}$ 范围内变化。

2.1 激光等离子体发射谱线

实验中测量了在不同缓冲气压下, 等离子体在可见光波段的多条发射谱线。图 3a 和图 3b 是在入射到靶面激光能量为 180mJ/脉冲、气压为 10^{-4}Pa 时, 选用 2400 条/mm 的光栅在不同的中心波长处测得的等离子体发射光谱谱线。为了计算等离子体电子温度, 着重研究 Al III 可见光波段的 4 条发射谱线, 有关光谱参量见表 1。等离子体电子密度的计算则利用 Al I 共振双线 394.40nm ($3p^2P_{1/2} \rightarrow 4s^2S_{1/2}$) 和 396.15nm ($3p^2P_{3/2} \rightarrow 4s^2S_{1/2}$) 谱线的斯塔克展宽。

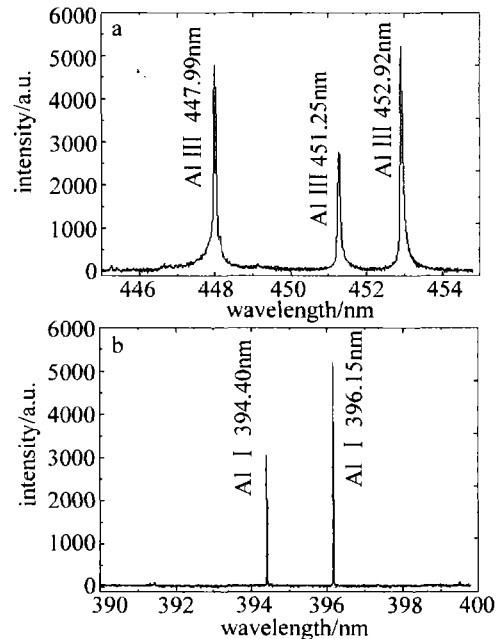


Fig. 3 a—emission spectrum of the Al III at 10^{-4}Pa in air b—emission spectrum of the resonance double lines of Al I at 10^{-4}Pa in air

Table 1 Parameters of Al III emission lines for electron temperature determination (values from reference [11])

transition	wavelength $\lambda_{i,j}/\text{nm}$	upper level energy E_i/eV	upper level degeneracy g_i	transition probability $A_{i,j}/10^8\text{s}^{-1}$
$4d^2D_{3/2} \rightarrow 5f^2F_{5/2}$	415.01	23.56837091250	6	2.04
$4f^2F_{7/2} \rightarrow 5g^2G_{9/2}$	447.99	23.57487382125	8	10.4
$4p^2P_{1/2} \rightarrow 4d^2D_{3/2}$	451.25	20.57837467875	4	2.15
$4p^2P_{3/2} \rightarrow 4d^2D_{5/2}$	452.92	20.57822697000	6	2.54

2.2 电子密度和电子温度测量

假设等离子体处于局域热平衡态,原子或离子发射谱线的展宽与等离子体的密度和温度有关。主要的展宽机制有:斯塔克展宽、多普勒展宽和仪器展宽。多普勒展宽的线性基本上是对称的高斯线型,主要由粒子的高速飞行导致的多普勒频移造成,实验表明,等离子体中激发态 Al 原子的飞行速率在 $2 \times 10^5 \text{ cm/s}$ 的数量级,相应的多普勒展宽的半峰全宽为 0.0025 nm 。通过减小光谱仪的入射狭缝宽度为 $10 \mu\text{m}$ 左右可以将仪器展宽降低到衍射极限。实验中光谱仪使用 2400 条/mm 的光栅测得的 394.40 nm 或 396.15 nm 的谱线来计算电子密度,测得的谱线 Al I 396.15 nm 的展宽的半峰全宽在 0.025 nm 左右。如果考虑到辐射原子是处于电子及离子包围之中,则长程库仑相互作用力占主导地位,从而引起谱线的斯塔克展宽。对于中性原子和一次电离的离子的谱线,谱线展宽主要由电子碰撞引起,离子准静态场对谱线加宽效应的贡献比电子碰撞小很多,可以忽略离子准静态场加宽。扣除多普勒展宽和仪器展宽后,可利用简化的斯塔克展宽公式计算电子密度^[12],如图 4 所示,谱线采用洛伦兹线型拟合。

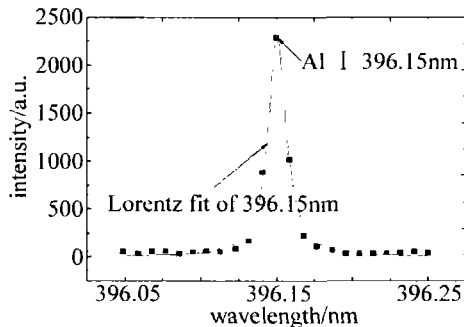


Fig. 4 The smooth curves represent the fitted Lorentzian profiles (Stark broadened profiles of Al I 396.15 nm at 100 Pa in air)

利用同一电离度的离子辐射的不同相对强度的谱线可以较为准确地定出电子温度。在局域热平衡近似下,原子或离子束缚态布居数密度满足玻尔兹曼分布率^[13],则:

$$\frac{n_{i,z}}{n_z} = \frac{g_{i,z}}{P_z} \exp\left(-\frac{E_{i,z}}{k_B T}\right) \quad (1)$$

式中, z 表示电荷态(例如: $z=0$ 表示原子, $z=1$ 表示 1 阶电离离子), k_B 为玻尔兹曼常数, $n_{i,z}$ 为布居数密度, $g_{i,z}$ 为跃迁谱线上能级统计权重, $E_{i,z}$ 为跃迁谱线上能级激发能量, P_z 为配分函数。对于光学薄的等离子体并忽略自吸收效应,对于原子或同一电荷态的离子,从高能级 i 跃迁到低能级 j ,发射谱线的积分强度可以写为:

$$I_z = \frac{hc}{4\pi\lambda_{i,j,z}} A_{i,j,z} n_{i,z} L \quad (2)$$

式中, h 为普朗克常数, c 为光速, L 为辐射等离子体的特征长度, $A_{i,j,z}$ 为跃迁几率, $\lambda_{i,j,z}$ 为发射谱线波长,下标 i,j 为变量。联立(1)式和(2)式,并取自然对数,得到:

$$\ln\left(\frac{I_z \lambda_{i,j,z}}{g_{i,j,z} A_{i,j,z}}\right) = -\frac{1}{k_B T} E_{i,z} + \ln\left(\frac{hcLn_z}{4\pi P_z}\right) \quad (3)$$

从上式看出,同一电荷态离子的谱线强度的对数值与该跃迁谱线上能级 $E_{i,z}$ 成线性关系。因此,可以采用作图的方法根据直线的斜率来确定等离子体温度,即玻尔兹曼作图法。根据表 1 中 Al III 的 4 条跃迁谱线,图 5 中给出了用于计算等离子体温度玻尔兹曼曲线,线性拟合的相关系数为 0.993 。

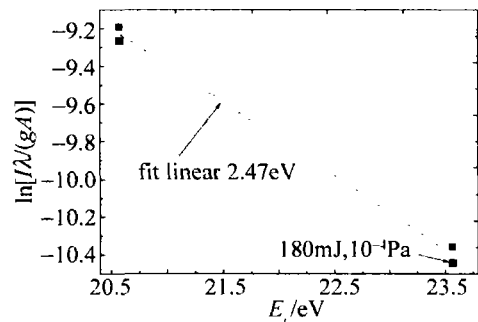


Fig. 5 Typical Boltzmann plot used for estimating temperature of the plasma, emission lines from doubly ionized aluminum species are used for obtaining the Boltzmann plot

最后值得指出的是,在纳秒量级的激光烧蚀实验中,由于等离子体中的电子-离子、电子-原子碰撞弛豫时间远小于等离子体膨胀时间,即使初始时电子的温度和离子温度差别很大,系统也能很快达到平衡。粒子的速度和动能满足麦克斯韦分布率,能级布居满足玻尔兹曼统计统计规律,电离态由萨哈方程决定,等离子体辐射能量密度满足普朗克辐射定律,等离子体可以认为处于局域热平衡态。McWhirter 判据^[14]给出了等离子体处于局域热平衡的电子密度满足 $n_e \geq 1.4 \times 10^{14} T^{n/2} (\Delta E)^3 \text{ cm}^{-3}$,其中 $T(\text{eV})$ 和 $\Delta E(\text{eV})$ 分别为等离子体温度和谱线最大能级间隔。考虑到最大能级间隔 $\Delta E = 2.997 \text{ eV}$,等离子体羽辉最高电子温度为 $T = 2.47 \text{ eV}$,计算得出处于局域热平衡的最小电子密度为 $5.9 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ 。通过谱线斯塔克展宽计算出的电子密度在 10^{16} cm^{-3} 的数量级,从而说明局域热平衡是一个较好的近似。

2.3 电子密度和电子温度随缓冲气压的变化

实验中保持入射激光脉冲能量在 180 mJ/脉冲 ,研究了缓冲气压对等离子体发射光谱的影响,缓冲气压的变化范围为 $10^{-4} \text{ Pa} \sim 2 \times 10^3 \text{ Pa}$ 。如前所述,根据表 1 给出的相关谱线参量,利用谱线的斯塔克展宽和玻尔兹曼作图法可计算等离子体的电子密度和电子温度,图 6 中给出了电子密度和电子温度随缓冲气压的

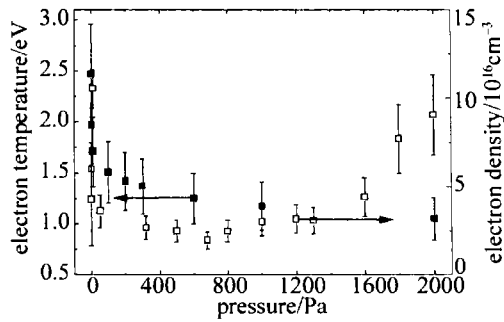


Fig. 6 Dependency of electron temperature and electron density of the Al plasma on air ambient pressures

变化曲线。由于在实验中激光能量存在波动,焦点位置也有一定的漂移,所测试光谱数据都进行累加 10 次取平均。从图中可以看出,电子温度随缓冲气压的增加而单调减少,电子密度随缓冲气压的变化有一个先减小后增大的过程。低气压时,气压还不足以束缚等离子体的快速膨胀,电子密度和电子温度随气压的增大而减少;随着气压增大到 600Pa 时,脉冲激光会击穿 Al 靶靶面附近的空气,此时 Al 蒸气会和空气等离子体发生强烈的相互作用,此外,较高气压时,缓冲气压会约束等离子体膨胀,等离子体电子密度又会有所增大。进一步增大气压到 3000Pa 时,空气等离子体会屏蔽激光脉冲能量,使到达靶面的激光能量急剧下降,Al 原子的特征谱线也随之减弱而几乎消失。

3 结论

利用 CO₂ 激光烧蚀 Al 靶产生等离子体,测试了不同缓冲气压下可见光波段的等离子体发射光谱。在局域热平衡和光学薄等离子体近似下,利用 Al I 共振双线 394.40nm 和 396.15nm 的斯塔克展宽计算了等离子体中的电子密度,根据 Al III 的 4 条发射谱线 415.01nm, 447.99nm, 451.25nm, 452.92nm 的相对强度,利用玻尔兹曼作图法,计算了等离子体的电子温度和电子密度,得到了电子密度和电子温度随缓冲气压的变化规律。

参 考 文 献

- [1] SABSABI M, CIELO P. Quantitative analysis of aluminum alloys by laser-induced breakdown spectroscopy and plasma characterization [J]. *Applied Spectroscopy*, 1995, 49(4): 499-507.
- [2] SINGH R K, HOLLAND O W, NARAYAN J. Theoretical model for deposition of superconducting thin films using pulsed laser evaporation technique[J]. *Journal of Applied Physics*, 1990, 68(1): 233-247.
- [3] KANTROWITZ A. Propulsion to orbit by ground-based lasers [J]. *Astronautics and Aeronautics*, 1972, 9(3): 34-35.
- [4] LIU X Y, WANG Z Y, HAO L Q, *et al.* Application of laser induced breakdown spectroscopy technology in biomedicine field [J]. *Laser Technology*, 2008, 32(2): 134-136 (in Chinese).
- [5] UNNIKRISHNAN V K, ALTI K, KARTHA V B, *et al.* Measurements of plasma temperature and electron density in laser-induced copper plasma by time-resolved spectroscopy of neutral atom and ion emissions[J]. *Indian Academy of Sciences*, 2010, 74(6): 983-993.
- [6] HARILAL S S, O'SHAY B, TILLACK M S, *et al.* Spectroscopic characterization of laser-induced tin plasma [J]. *Journal of Applied Physics*, 2005, 98(1): 013306.
- [7] ABDELLATIF G, IMAM H. A study of the laser plasma parameters at different laser wavelength [J]. *Spectrochimica Acta*, 2002, B57(7): 1155-1165.
- [8] TANG X S, LI C Y, ZHU G L, *et al.* Experimental investigation on the electron density and electron temperature of laser-induced Al plasmas [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2004, 31(6): 687-692 (in Chinese).
- [9] SONG Y Z, HE A Z. Doppler effect on width of characteristic line in plasma induced by pulsed laser ablating Al [J]. *Spectroscopy and Spectral Analysis*, 2005, 25(5): 655-659 (in Chinese).
- [10] ZHANG Y H, SONG Y Z, WANG X T. Investigation on time-and space-evolution of the resonance double lines of aluminum in laser induced plasma [J]. *Acta Optica Sinica*, 1999, 19(1): 28-34 (in Chinese).
- [11] SANSONETTI J E, MARTIN W C. Handbook of basic atomic spectroscopic data [J/OL]. [2010-10-5]. <http://physics.nist.gov/PhysRefData/Handbook/Tables/aluminumtable3.htm>.
- [12] RÖNDIGS G, KUSCH H J. Electron impact broadening of Aluminum I-lines [J]. *Astronomy and Astrophysics*, 1979, 71(1): 44-46.
- [13] GRIEM H R. Principles of plasma spectroscopy [M]. New York: Cambridge University Press, 1997: 279-287.
- [14] McWHIRTER R W P. Plasma diagnostic technique [M]. New York: Academic Press, 1965: 201-264.
- [23] ZHANG X, YAO B Q, WANG Y Zh, *et al.* Middle-infrared intracavity periodically poled MgO:LiNbO₃ optical parametric oscillator [J]. *Chinese Optical Letters*, 2007, 5(7): 426-427.
- [24] ZHONG K, LI J S, CUI H X, *et al.* Low threshold and high conversion efficiency nanosecond mid-infrared KTA OPO [J]. *Chinese Physical Letters*, 2009, 26(12): 124213.
- [25] DONG X L, ZHANG B T, HE J L, *et al.* High-power 1.5 and 3.4 μm intracavity KTA OPO driven by a diode-pumped Q-switched Nd:YAG laser [J]. *Optics Communications*, 2009, 282(8): 1668-1670.
- [26] CUI Q, ZONG N, XU Y, *et al.* 2 μm singly resonant optical parametric oscillator [J]. *Chinese Physical Letters*, 2009, 7(6): 519-520.
- [27] SHENG Q, DING X, CHEN N, *et al.* Continuous-wave tunable intra-cavity optical parametric oscillator and orange-red source [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2010, 37(11): 2821-2824 (in Chinese).
- [28] YAN B X, BI Y, ZHOU M, *et al.* Highly efficient continuous-wave Mid-infrared intracavity singly resonant optical parametric oscillator based on MgO:PPLN [J]. *Chinese Physical Letters*, 2010, 27(12): 124203.

(上接第 760 页)